

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11) 特許番号

特許第3360349号

(P3360349)

(45) 発行日 平成14年12月24日 (2002. 12. 24)

(24) 登録日 平成14年10月18日 (2002. 10. 18)

(51) Int.Cl.⁷ 識別記号

H 0 1 M 8/06
8/02
8/10

F I

H 0 1 M 8/06 R
8/02 E
8/10

請求項の数 3 (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平5-108601

(22) 出願日 平成5年5月10日 (1993. 5. 10)

(65) 公開番号 特開平6-325782

(43) 公開日 平成6年11月25日 (1994. 11. 25)

審査請求日 平成11年12月15日 (1999. 12. 15)

(73) 特許権者 000002130

住友電気工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号

(72) 発明者 岡 良雄

大阪市此花区島屋一丁目1番3号 住友

電気工業株式会社 大阪製作所内

(74) 代理人 100064746

弁理士 深見 久郎 (外3名)

審査官 原 賢一

(56) 参考文献 特開 昭62-256976 (J P, A)

特公 昭58-15544 (J P, B 1)

(58) 調査した分野 (Int.Cl.⁷, D B 名)

H01M 8/02 - 8/10

(54) 【発明の名称】 燃料電池

1

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】 触媒を含む材料からなる第1の電極と、
前記第1の電極の表面に接するように設けられ、陽イオン交換能を有する第1の電解質層と、
前記第1の電解質層の表面に接するように設けられ、触媒を含む材料からなる第2の電極と、
前記第1の電極に燃料を供給するための燃料供給手段と、
触媒を含む材料からなる第3の電極と、
前記第3の電極の表面に接するように設けられ、陽イオン交換能を有する第2の電解質層と、
前記第2の電解質層の表面に接するように設けられ、触媒を含む材料からなる第4の電極と、
前記第2の電極において生成された還元剤を前記第3の電極へ供給する手段と、

2

前記第2の電極と前記第3の電極との間に設けられる、電流を通電する手段と、
前記第4の電極へ酸化剤を供給するための酸化剤供給手段とを備え、
前記第1および第4の電極から電流を取出す、燃料電池。

【請求項2】 前記第2の電極において生成された還元剤を前記第3の電極へ供給する手段、および、前記第2の電極と前記第3の電極との間に設けられる、電流を通電する手段が、同一の導電性の多孔質部材で形成される、請求項1に記載の燃料電池。

【請求項3】 前記燃料は、少なくともメタノールおよび水を含み、かつ前記還元剤は水素を含む、請求項1または2に記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、燃料電池に関し、特に燃料を改質して発電を行なう燃料電池であって、大気汚染の少ない燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】従来技術として、還元剤として水素を用い、酸化剤として酸素を用い、外部へ電流を取出す燃料電池が知られている。

【0003】図6は、従来の燃料電池（単セル）を概略的に示す構成図である。図6を参照して、この燃料電池600は、負極608と、電解質層601と、正極609を含む。負極608と正極609とは、電解質層601を中央に介して、互いに相対向するように設けられる。負極608は、電解質層601にその表面が接するように設けられ、また、正極609は、電解質層601にその表面が接するように設けられる。負極608と正極609とは、それぞれ、炭素等の多孔性の部材で形成される。また、負極608と正極609とは、それぞれ、白金等の触媒を含む。また、電解質層601としては、たとえば、陽イオン交換膜が用いられる。

【0004】負極608には、負極活物質が外部より連続的に供給され、正極609には、正極活物質が外部より連続的に供給されるようになっている。

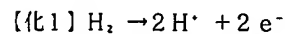
【0005】負極活物質としては、燃料（還元剤）が用いられ、正極活物質としては、酸化剤が用いられる。また、燃料電池600内で生成された反応生成物は、遅滞なくセル外に除去されるように構成されている。

【0006】燃料（還元剤）としては、たとえば水素が用いられ、酸化剤としては、たとえば酸素が用いられる。

【0007】次に、燃料電池600の動作（発電原理）について、電解質層601として、陽イオン交換膜を用いた、水素-酸素系燃料電池を例にとり、以下に説明する。

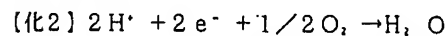
【0008】まず、負極608と正極609との間に外部負荷605を有する、外部負荷回路604を接続する。すると、負極608では、下記に示す反応が生じ、水素イオン（ H^+ ）が生成され、また、電子が外部負荷回路604へ放出される。

【0009】



一方、正極609では、酸素が外部負荷回路604を通過してきた電子、および、陽イオン交換膜を通過してきた H^+ と反応して、下記に示す反応により水が生成される。

【0010】



このときに、負極608と正極609との間に、約1Vの起電力が得られる。

【0011】ところで、実用レベルの燃料電池では、その発生電圧を高めるため、上記した燃料電池（単セル）

を直列に数十ないし数百積層している。

【0012】また、燃料となる水素は、上記した電極反応を円滑に進めるうえでは、純水素であることが好ましい。

【0013】しかしながら、水素は一般的に価格が高く、また、水素を貯蔵するには、高圧タンクや水素吸蔵合金を用いる必要がある。このため、外部に水素を貯蔵して、貯蔵された水素を燃料（還元剤）として用いる燃料電池は、燃料電池の製造コストやランニングコストが高くなるという問題があった。

【0014】かかる問題を解決する技術としては、特開平4-129173号公報に記載されたような発明が存在する。特開平4-129173号公報に記載される燃料電池は、天然ガス等と水から水素を取出すための改質器と、改質器により取出された水素を用いて発電を行なう発電部とを備える。

【0015】図7は、特開平4-129173号公報に記載される燃料改質器の要部を概略的に示す断面図である。図7を参照して、この改質器700は、改質反応管701と、改質反応管701の内部に配設された水素分離管702を含む。改質反応管701と水素分離管702により形成される空隙部703の一部には、Ni等の改質触媒704が詰められる。また、水素分離管702は、多孔質性の金属管にパラジウム薄膜が形成されてなる。空隙部703には、たとえば、メタン（ CH_4 ）と水（ $H_2 O$ ）が供給される。改質反応管701内では、下記に示す反応が生じる。

【0016】

【化3】 $CH_4 + H_2 O \rightarrow CO + CO_2 + H_2 O + H_2$
生成された水素（ H_2 ）は、水素分離管702内に取出され、水分（ $H_2 O$ ）、 CO 、 CO_2 等は、大気へ放出されるようになっている。

【0017】図6および図7を参照して、水素分離管702内に取出された水素は、負極608に送られ、発電に供せられる。

【0018】特開平4-129173号公報に記載される燃料電池は、燃料電池の発電部に、 CH_4 、 C 、 H_2 、 C 、 H_2 、 CH_4 、 OH 等の燃料から燃料改質を行なって得られた純水素（ H_2 ）を持ち、効率的な発電を行なうことができるという長所がある。

【0019】このように、従来より、燃料電池の製造コストやランニングコストを低減することを目的として、天然ガスやアルコール等から水素を発生させるための装置として、改質器を設け、改質器により天然ガスやアルコール等を改質して水素を生成し、生成された水素を用いて発電を行なう燃料電池が種々提案されてきた。

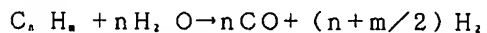
【0020】従来の改質器において行なわれる水素発生方法には、原料ガスに水蒸気を加えて、原料炭化水素を水素、一酸化炭素および二酸化炭素に変換させる水蒸気改質法と、原料炭化水素の一部を燃焼させて、水素、一

酸化炭素および二酸化炭素を得る部分酸化（部分燃焼）法とがある。

【0021】炭化水素を一般に C_nH_m で表わせば、水蒸気改質法において起こる反応は、下記に示す反応として示すことができる。

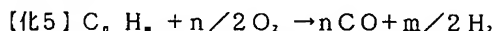
【0022】

【化4】



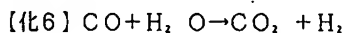
また、同様に、炭化水素を一般に C_nH_m で表わせば、部分酸化法において起こる反応は、下記に示す反応として示すことができる。

【0023】

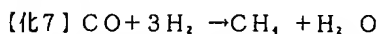


これらの反応において、一酸化炭素の一部は、次に示す反応を起こし、これらの反応は、平衡を保って進行する。

【0024】



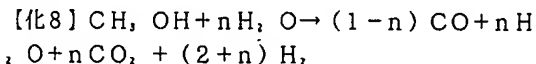
【0025】



化4に示される反応は吸熱反応で、他の反応は発熱反応である。したがって、化4に示される反応では、外部から加熱する必要があり、通常、ニッケル系の触媒を充填した耐熱金属製の反応管で、温度800℃～900℃において反応が行なわれる。一方、このような温度では、化6および化7の反応はあまり右側に進行せず、たとえば、850℃での反応の場合、二酸化炭素の濃度は、13%～14%であり、メタンの濃度は、3%～4%である。

【0026】また、炭化水素の代わりにアルコールの一種であるメタノールを用いた場合は、水と次式のような反応で改質は進行する。

【0027】



ただし、 $0 < n < 1$

化8に示される反応は、 $0\text{ kg/cm}^2 \sim 20\text{ kg/cm}^2$ の圧力、200℃～600℃の温度に設定することが好ましいとされている。

【0028】

【発明が解決しようとする課題】上述した反応を行なった後、改質器を出るガス中には、かなりの濃度の一酸化炭素が含まれている。

【0029】このため、改質器を出るガス中に含まれる一酸化炭素が、燃料電池の触媒等を被毒し、正常な電池反応を妨げる場合がある。

【0030】そこで、一酸化炭素の残存量を低くするため、化6に示す反応を右に押し進めるべく、一酸化炭素転換器という装置が用いられる。一酸化炭素転換器では、発熱反応である化6に示す反応を押し進めるため

に、まず、350℃～370℃程度に反応温度を設定し、反応速度を高めるため鉄-クロム系などの触媒を用いて、いわゆる高温転化（Hot Shift）を行ない、さらに、銅-亜鉛系の触媒を用いて、200℃～230℃程度で低温転化（Cold Shift）を行なわせる。これにより、一酸化炭素濃度を低減させることができる。

【0031】一方、燃料がアルコールの場合は、この改質反応の後、改質ガスのCOをさらに低減するため、COシフト触媒が用いられる。COシフト触媒としては、鉄-クロム系の触媒、銅-亜鉛系の触媒等が用いられる。COシフト処理では、COが、 H_2O との反応により、COの濃度が、1%程度の濃度にまで低減される。また、さらに、CO濃度を引き下げるためには、第2のCO低減装置によって、改質ガスをさらに空気と反応させることにより、100ppmまでCO濃度を低減させることが可能である。しかし、このような方法では、装置自体が複雑になり、高温を要するなどという問題がある。特に、このような燃料電池を電気自動車等に用いる場合は、システムが大きくなるという問題がある。

【0032】本発明は、以上のような問題を解決するためになされたものであって、上記のような複雑なフローシステムを用いることなく、燃料から、一酸化炭素（CO）をほとんど発生することなく水素ガスを発生し、生成された水素ガスをを用いて発電を行なうことができる、コンパクトな燃料電池を提供することを目的とする。

【0033】

【0034】

【0035】

【課題を解決するための手段】本発明に従う燃料電池は、触媒を含む材料からなる第1の電極と、第1の電極の表面に接するように設けられ、陽イオン交換能を有する第1の電解質層と、第1の電解質層の表面に接するように設けられ、触媒を含む材料からなる第2の電極と、第1の電極に燃料を供給するための燃料供給手段と、触媒を含む材料からなる第3の電極と、第3の電極の表面に接するように設けられ、陽イオン交換能を有する第2の電解質層と、第2の電解質層の表面に接するように設けられ、触媒を含む材料からなる第4の電極と、第2の電極において生成された還元剤を第3の電極へ供給する手段と、第2の電極と第3の電極との間に設けられる、電流を通電する手段と、第4の電極へ酸化剤を供給するための酸化剤供給手段とを備え、第1および第4の電極から電流を取出す。

【0036】本発明に従う燃料電池は、好ましくは、第2の電極において生成された還元剤を第3の電極へ供給する手段、および、第2の電極と第3の電極との間に設けられる、電流を通電する手段が、同一の導電性の多孔質部材で形成される。

【0037】尚、多孔質部材は、一方側の表面と他方

側の表面を連通する連通気孔を含む。

【0038】また、本発明に従う燃料電池は、好ましくは、燃料は、少なくともメタノールおよび水を含み、かつ還元剤は水素を含む。

【0039】尚、本明細書で用いる用語「電極」は、燃料用電極、対向電極、燃料用電極とセパレータとの組合せにより構成される電極、対向電極とセパレータとの組合せにより構成される電極を含む。

【0040】

【作用】本発明の作用機構を図を用いて以下に説明する。 10

【0041】図2は、本発明に従う燃料電池において用いられる、燃料を電気化学的に分解して、還元剤を生成するための還元剤生成手段の一例を模式的に示す構成図である。図2を参照して、この還元剤生成装置200は、第1の電極208と、陽イオン交換能を有する電解質層201と、第2の電極209を含む。

【0042】陽イオン交換能を有する電解質層201としては、たとえば、固体高分子電解質からなる陽イオン交換膜等が用いられる。

【0043】第1の電極208は、たとえば、白金触媒を担持させた多孔質性の燃料用電極202と、導電性のセパレータ206を含む。

【0044】また、第2の電極209は、たとえば、白金触媒を担持させた多孔質性の対向電極203と、導電性のセパレータ207を含む。

【0045】燃料用電極202の一方側の表面202aは、電解質層201の一方側の表面201aに接するように設けられる。

【0046】対向電極203の一方側の表面203a 30は、電解質層201の他方側の表面201bに接するように設けられる。

【0047】電解質層201を中央に介して、燃料用電極202と対向電極203とが相対するように組合わされた接合体は、セパレータ206と、セパレータ207とにより挟持される。

【0048】セパレータ206の燃料用電極202に接する側の面206aには、燃料を供給し、反応生成物を排出するための手段として、複数の燃料供給用兼CO₂排出用溝206hが形成される。

【0049】セパレータ207の対向電極203に接する側の面207aには、複数の水素(H₂)排出用溝207hが形成される。

【0050】燃料用電極202には、燃料が外部より供給されるようになっている。燃料用電極202と、対向電極203には、それぞれ、セパレータ206およびセパレータ207を介して、外部回路204が電氣的に接続される。

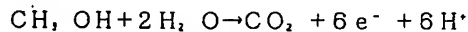
【0051】外部回路204には、第1の電極208を正極とし、第2の電極209を負極とするように、電圧 50

を印加するための手段として直流電源205が設けられている。燃料用電極202は正極とされ、対向電極203は負極とされる。

【0052】上述した還元剤生成装置200において、燃料用電極202に燃料であるメタノールとともに水または水蒸気を供給し、外部回路204を通じて、燃料用電極202から電子を引き抜くように電圧を印加する。その結果、燃料用電極202では、次の反応が進行する。

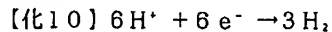
【0053】

【化9】



燃料用電極202で発生した水素イオンは、陽イオン交換膜を通過し、対向電極203で次のように変換される。

【0054】



このようなプロセスにより、対向電極203側で、水素を選択的に生成させることができる。また、化9に示す反応式から明らかなように、この反応では、COが殆ど生成されないため、一酸化炭素濃度を極めて低い水準に保つことができる。

【0055】次に、還元剤生成手段により生成された還元剤を用いて発電を行なう発電手段の作用機構を図を用いて以下に説明する。

【0056】図3は、本発明に従う燃料電池において用いられる、還元剤生成手段により生成された還元剤を用いて発電を行なう発電手段の一例を模式的に示す構成図である。図3を参照して、この発電装置300は、第3の電極308と、陽イオン交換能を有する電解質層301と、第4の電極309を含む。

【0057】陽イオン交換能を有する電解質層301としては、たとえば、固体高分子電解質からなる陽イオン交換膜等が用いられる。

【0058】第3の電極308は、たとえば、白金触媒を担持させた多孔質性の燃料用電極302と、導電性のセパレータ306を含む。

【0059】また、第4の電極309は、たとえば、白金触媒を担持させた多孔質性の対向電極303と、導電性のセパレータ307を含む。

【0060】燃料用電極302の一方側の表面302aは、電解質層301の一方側の表面301aに接するように設けられる。

【0061】対向電極303の一方側の表面303aは、電解質層301の他方側の表面301bに接するように設けられる。

【0062】電解質層301を中央に介して、燃料用電極302と対向電極303が相対するように組合わされた接合体は、セパレータ306とセパレータ307とにより挟持される。

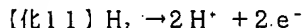
【0063】セパレータ306の燃料用電極302に接する側の面306aには、燃料(H_2)を供給するための手段として、複数の306hが形成される。

【0064】セパレータ307の対向電極303に接する側の面307aには、酸化剤を供給し、反応生成物を排出するための手段として、複数の酸素供給用兼 H_2 、 O 排出用溝307hが形成される。

【0065】燃料用電極302には、上述した還元剤生成装置200により発生した水素が供給されるようになっている。また、対向電極303には、酸素(O_2)が外部より供給されるようになっている。

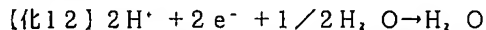
【0066】燃料用電極302と、対向電極303に、それぞれ、セパレータ306およびセパレータ307を介して、外部負荷305を有する外部負荷回路304を接続する。すると、燃料用電極302では、燃料用電極302から電子を引き抜くように電流が流れ、燃料用電流302では、次の反応が進行する。

【0067】



一方、対向電極303では、次の反応が進行する。

【0068】



このときに、燃料電極302が負極、対向電極303が正極となり、外部に電流を取出すことができる。

【0069】

【実施例】以下、実施例を用いて、本発明について説明するが、本発明は、以下の実施例によっては何ら限定されることはない。

【0070】実施例1

図1は、参考のために、燃料電池の一実施例を模式的に示す構成図である。

【0071】図1を参照して、この燃料電池100は、還元剤生成装置200と、発電装置300を含む。

【0072】還元剤生成装置200は、図2に示す還元剤生成装置200と同様であるので、その説明を省略する。

【0073】また、発電装置300は、図3に示す発電装置300と同様であるので、その説明を省略する。

【0074】図1、図2および図3を参照して、対向電極203で生成された還元剤は、還元剤供給用管路250により、燃料用電極302に供給される。

【0075】本実施例においては、還元剤生成装置200を構成する燃料用電極202と、対向電極203は、次のようにして形成した。

【0076】まず、電解質層201として、固体高分子電解質膜からなる陽イオン交換膜(商品名NAFION 117[®](デュボン社製))を準備した。

【0077】次に、金属塩として、3%塩化白金酸液、還元剤として1%NaBH₄溶液を用い、陽イオン交換膜に還元剤を浸透させた後、陽イオン交換膜の表面を塩

化白金酸溶液に接触させて、白金層を析出させた。この方法により、陽イオン交換膜の表面に、多孔質性の白金触媒層を形成し、1対の電極とした。

【0078】また、本実施例においては、発電装置300を構成する燃料用電極302と、対向電極303は、次のようにして形成した。

【0079】燃料用電極302および対向電極303の基材として、導電性カーボン:PTFE(ポリテトラフルオロエチレン)=3:7からなる多孔質性の基材を準備した。次に、この基材に触媒として、白金を5mg/cm²の質量で担持した。電解質層301として、固体高分子電解質膜からなる陽イオン交換膜(商品名NAFION 117[®](デュボン社製))を用いた。

【0080】次に、この燃料電池100の還元剤生成装置200を構成する燃料用電極202側に、モル比がメタノール:水=1:2のメタノール-水混合液を供給し、還元剤生成装置200を構成するセルの温度を30℃に設定した。そして、燃料用電極202側をプラスとし、燃料用電極202と対向電極203との間に、0.2Vの電圧を加えたところ、1.0mA/cm²の電流が流れ、燃料用電極202からCO₂が、対向電極203から水素ガスが発生した。発生した水素中には、一酸化炭素は検出されなかった。

【0081】次に、還元剤生成装置200から生成された水素を還元剤供給用管路250を用いて、発電装置300を構成する燃料用電極302に供給した。

【0082】還元剤生成装置200により生成された水素を燃料用電極302に供給し、対向電極303に酸素を供給したところ、発電装置200では、1.0mA/cm²、0.9Vの出力電圧を得た。

【0083】この結果、1mA/cm²の電流値にて、還元剤生成装置200で必要とした電圧0.2Vを発電装置300において出力された出力電圧0.9Vから差し引くと、燃料電池100全体では、1mA/cm²、0.7Vの出力電圧を得ることができた。

【0084】尚、本実施例では、還元剤生成装置200に、外部電源205を設けた例を示したが、このような外部電源205として、発電装置300を用いても良い。

【0085】実施例2

図4は、本発明に従う燃料電池の一実施例を模式的に示す構成図である。

【0086】図4を参照して、この燃料電池400は、セパレータ421、多孔性の集電層406、燃料用電極(メタノール極)402、陽イオン交換膜層401、対向電極(水素発生極)403、多孔性の集電層420、燃料用電極(水素極)412、陽イオン交換膜層411、対向電極(酸素極)413、多孔性の集電層417およびセパレータ422が、この順に、互いに接するように順次積層されてなる。

11

【0087】セパレータ421およびセパレータ422には、外部負荷回路に接続するための端子423、424がそれぞれ設けられる。

【0088】多孔性の集電層406の燃料用電極402に接する側の面406aには、燃料を供給し、反応生成物を排出するための手段として、複数の燃料供給用兼 CO_2 排出用溝406hが形成される。

【0089】多孔性の集電層420の対向電極403に接する側の面420aには、複数の水素排出用溝420haが形成される。

【0090】多孔性の集電層420の燃料用電極412に接する側の面420bには、複数の水素供給用溝420hbが形成される。

【0091】多孔性の集電層417の対向電極413に接する側の面417aには、酸化剤を供給し、反応生成物を排出するための手段として、複数の酸素供給用兼 H_2O 排出用溝417hが形成される。

【0092】また、燃料用電極402には、燃料を供給するための燃料供給手段（図示せず）が設けられる。

【0093】また、対向電極413には、酸化剤を供給するための酸化剤供給手段（図示せず）が設けられる。

【0094】多孔性の集電層420は、多孔性集電層420の一方側の面420aと、他方側の面420bを連通する連通気孔を有する多孔質性の部材で構成されている。

【0095】また、対向電極413には、対向電極413で生成された反応生成物（ H_2 、 O ）および対向電極413へ供給された余剰の酸化剤を燃料電池400から排出するための手段（図示せず）が設けられる。

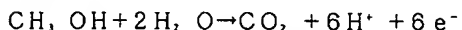
【0096】次に、燃料として、メタノールと水を用いた場合を例にとり、燃料電池400の動作について以下に説明する。

【0097】まず、燃料用電極402に、メタノールと水を導入し、燃料用電極402を正極とし、対向電極403を負極とするように、電圧を印加する。

【0098】すると、燃料用電極402では、次式の反応が進行する。

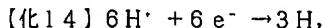
【0099】

【化13】



この反応で生じた H^+ は、陽イオン交換膜401を通過して、対向電極403にて、次式のように H_2 を発生する。

【0100】



発生した水素は、集電層420の連通気孔を通過して、燃料用電極（水素極）412に到達する。

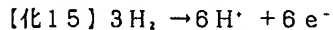
【0101】次に、対向電極（酸素極）413へ酸素を供給する。また、燃料用電極402と対向電極403に印加していた電源を取除く。次に、端子423と端子4

12

24に外部負荷回路（図示せず）を接続する。

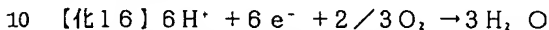
【0102】すると、燃料用電極（水素極）412では、電子を引き抜かれて次式のような反応を起こす。

【0103】



この反応で生じた H^+ は、陽イオン交換膜411を通過して、対向電極（酸素極）413にて次式のような反応を起こす。

【0104】



以下、連続的に燃料用電極402にメタノールと水を供給し、対向電極（酸素極）417に連続的に酸素を供給することにより、外部に連続的に電流を取出すことができる。

【0105】以下、具体的なデータに基づいて、さらに詳しく説明する。集電層406、集電層420、集電層417として、多孔質カーボン板を用いた。

【0106】本実施例においては、燃料用電極402と対向電極（水素発生極）403は、次のようにして形成した。

【0107】まず、陽イオン交換膜層401として、固体高分子電解質膜からなる陽イオン交換膜（商品名NAFION117[®]（デュボン社製））を準備した。次に、金属塩として、3%塩化白金酸液、還元剤として1%NaBH₄溶液を用いて、陽イオン交換膜に還元剤を浸透させた後、陽イオン交換膜の表面を塩化白金酸溶液に接触させて、白金層を析出させた。この方法により、陽イオン交換膜の両面に、多孔質の白金触媒層を形成し、1対の電極とした。

【0108】また、本実施例においては、燃料用電極（水素極）412と、対向電極（酸素極）413は次のようにして形成した。

【0109】燃料用電極412および対向電極413の基材として、導電性カーボン：PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）＝3：7からなる多孔質性の基材を準備した。次に、この基材に触媒として、白金を5mg/cm²の質量で担持した。

【0110】陽イオン交換膜層411として、固体高分子電解質膜からなる陽イオン交換膜（商品名NAFION117[®]（デュボン社製））を用いた。

【0111】次に、燃料用電極402側に、モル比がメタノール：水＝1：1のメタノール-水混合液を供給し、セルの温度を30℃に設定した。そして、燃料用電極402側をプラスとし、燃料用電極402と対向電極403との間に0.2Vの電圧を加えたところ、1.0mA/cm²の電流が流れ、燃料用電極402から CO_2 が、対向電極403から水素ガスが発生した。発生した水素中には一酸化炭素は検出されなかった。この操作を一定時間続けた後、対向電極（酸素極）413に酸素を供給した。次に、燃料用電極402と対向電極403

との間に印加していた電圧を去除した。

【0112】次に、端子423と端子424を外部負荷回路（図示せず）に接続した。以下、連続的に燃料用電極402にメタノールと水を供給し、対向電極（酸素極）413に酸素を連続的に供給することにより、燃料電池400全体で、 1.0 mA/cm^2 の電流密度、 0.7 V の出力電圧を連続的に取出すことができた。

【0113】なお、本実施例では、集電層406および集電層417として、多孔質性の基材を用いたが、集電層406および集電層417は、緻密な材料で形成されていてもよい。

【0114】また、集電層406と集電層417に緻密な材料を用いた場合は、セパレータ421と、セパレータ422は、特に必要な部材ではないことを付記しておく。

【0115】また、集電層420に設けられた、水素排出用溝420ha、水素供給用溝420hbは、各々、必要により形成されておればよく、本発明の必須の構成要素ではないことを付記しておく。

【0116】尚、本実施例では、燃料用電極402に、メタノールと水を導入し、燃料用電極402を正極とし、対向電極403を負極とするように電圧を印加し、しかる後に、対向電極403において生成され、燃料用電極412に到達した水素と、対向電極413へ供給された酸素とを用いて燃料電池400を起動させた例を示したが、燃料電池400の起動方法は、上記した起動方法に限定されることはない。燃料用電極412に外部より水素を供給し、対向電極413へ酸素を供給し、しかる後に、燃料用電極402に、メタノールと水を導入することによっても燃料電池400を起動させても良い。

【0117】実施例3

実施例2に示す燃料電池400を単セルユニットとし、この単セルユニットを直列に4セル積層させ、実施例2と同様の操作を行なった。

【0118】以上の操作により、実施例3に示す4セル直列型燃料電池では、電流密度 1.0 mA/cm^2 、出力電圧 2.8 V を、連続的に取出すことができた。

【0119】なお、以上の実施例に関する開示は、本発明の単なる具体例にすぎず、本発明の技術的範囲を何ら制限するものではない。

【0120】本発明において用いる、陽イオン交換能を有する電解質層としては、陽イオンを選択的に透過させるものであれば特に限定されることはない。そのような陽イオン交換能を有する電解質層は、固体であっても、また、電解液等の液体であってもよい。陽イオン交換能を有する電解質層として、陽イオン交換膜を用いる場合は、たとえば、固体高分子電解質膜、リン酸を含むマトリックスからなる膜、硫酸を含むマトリックスからなる膜、固体電解質よりなる膜などを挙げることができる。また、陽イオン交換基として、スルホン酸、ホスホン

酸、硫酸エステル、リン酸エステルなどを有するイオン交換膜を用いることができる。

【0121】また、本発明において用いる触媒は、特に以下の場合に限定されるものではないが、白金（Pt）、ロジウム（Rh）、パラジウム（Pd）、ルテニウム（Ru）、金（Au）、イリジウム（Ir）または、これらの金属と、ニッケル（Ni）、コバルト（Co）等の合金等を挙げることができる。また、電極は、白金（Pt）、ロジウム（Rh）、パラジウム（Pd）、ルテニウム（Ru）、金（Au）、イリジウム（Ir）およびこれらの元素の少なくともいずれかを含む合金等の触媒材料自体から形成してもよいし、導電性のカーボン電極等に触媒材料を担持させたもの等から形成してもよい。

【0122】本発明に従う電極は、たとえば、陽イオン交換膜の膜の表面の多孔構造内に、電極材料を析出させることによって形成することができる。その他、本発明に従う電極は、予め燃結等で作製した多孔質体に触媒を担持すること等により形成することができる。

【0123】本発明において、燃料供給手段は、たとえば、電極の一方に燃料を接触させるため、燃料を収容する容器もしくは槽、該容器もしくは槽に燃料を所定の圧力で送り込むためのポンプ等を備えることができるが、これらに限定されず、電極に燃料を供給する機構であれば、いかなるものも用いることができる。

【0124】本発明に従う燃料電池において用いる燃料としては、少なくともメタノールおよび水を含むものを挙げることができる。

【0125】また、実施例2に示すユニットを直列に多数積層することにより、高電圧化も可能となる。図5は、そのような燃料電池400が、多数直列に積層された燃料電池を模式的に示す構成図である。

【0126】図5を参照して、燃料電池の発電部は、燃料電池400が多数直列に積層されて構成されている。

【0127】そして、多数直列に積層されてなる燃料電池400の両端の電池セルユニットの燃料が供給される側の集電層と、酸化剤が供給される側の集電層には、それぞれ端子が設けられ、外部負荷505を有する外部端子504が接続される。

40 【0128】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、従来のような複雑な反応系およびフローシステムは必要でなく、非常にシンプルな装置によって、純度の高い水素を生成することができる。本発明によれば、CO等の不純物の生成は抑制される。

【0129】このため、本発明に従う燃料電池は、生成されるCOが著しく低減されているため、触媒の被毒による化学反応性の低下も防止される。

50 【0130】また、本発明に従う燃料電池（単セル）を複数直列に積層することにより、高電圧化も可能とな

15

る。

【図面の簡単な説明】

【図1】 参考に挙げた燃料電池の一具体例を模式的に示す構成図である。

【図2】 本発明に従う燃料電池の還元剤生成装置の一具体例を模式的に示す構成図である。

【図3】 本発明に従う燃料電池の発電装置の一実施例を模式的に示す構成図である。

【図4】 本発明に従う燃料電池の一具体例を模式的に示す構成図である。

【図5】 本発明に従う燃料電池（単セル）が直列に複数積層された燃料電池の一具体例を模式的に示す構成図である。

【図6】 従来の燃料電池を模式的に示す構成図である。

【図7】 従来の燃料改質器を模式的に示す構成図である。

【符号の説明】

100、400、500 燃料電池

16

*200 還元剤生成装置

201、301、401、411 陽イオン交換能を有する電解質層

202、302、402、412 燃料用電極

203、303、403、413 対向電極

204、304、504 外部回路

205 電源

206、207、306、307、421、422 セパレータ

10 206h、406h 燃料供給用兼CO₂排出用溝

207h、420ha 水素排出用溝

208、209、308、309 電極

300 発電装置

305、505 外部負荷

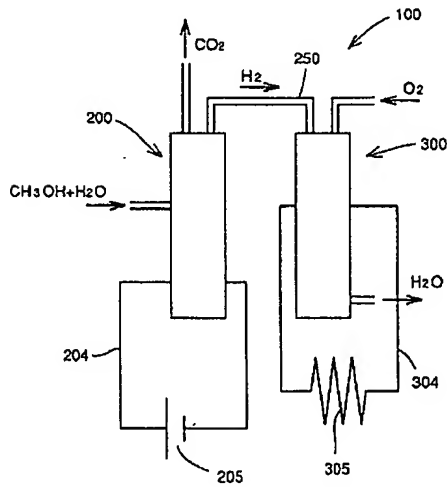
306h、420hb 水素供給用溝

307h、417h 酸素供給用兼H₂O排出用溝

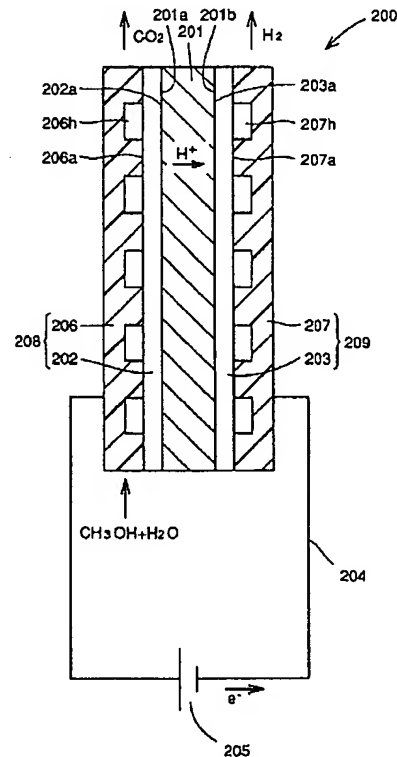
406、420、417 集電層

* 423、424 端子

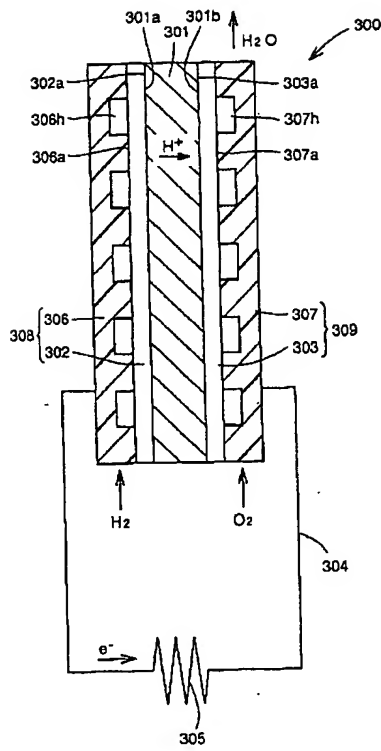
【図1】



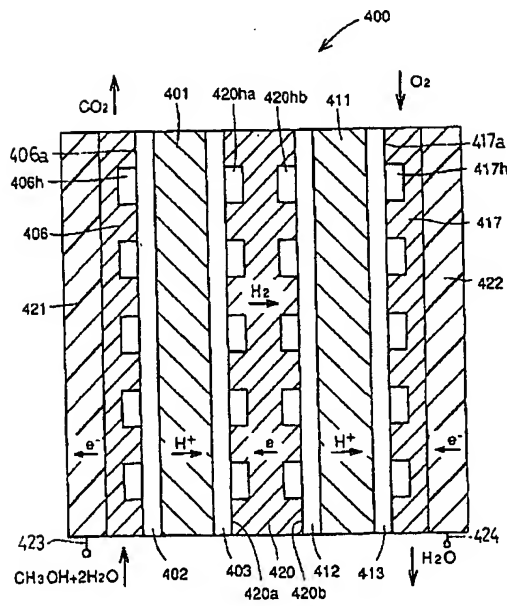
【図2】



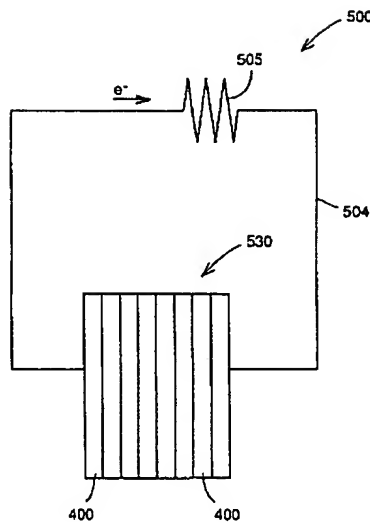
【図3】



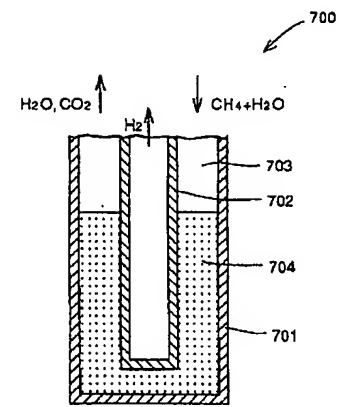
【図4】



【図5】



【図7】



【図6】

